

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 62-191420
(43)Date of publication of application : 21.08.1987

(51)Int.CI.
C01F 7/02
C04B 35/10
// C08K 7/18
C08K 7/18
C09C 3/00

(21)Application number : 61-030923 (71)Applicant : SHOWA ALUM IND KK
(22)Date of filing : 17.02.1986 (72)Inventor : ODA YUKIO
OGAWA JUN

(54) SPHERICAL CORUNDUM PARTICLE AND PRODUCTION THEREOF

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide spherical corundum particles having maximum single particle diameter and average particle diameter of smaller than specific respective levels, free from cutting edge and useful as a filler or aggregate having low grinding and abrading power of particles.

CONSTITUTION: Spherical corundum particles having maximum single particle diameter of $\leq 150 \mu$ and an average particle diameter of $5W35\mu$ and free from cutting edge. The particle has excellent intrinsic characteristics of corundum such as thermal conductivity, electrical insulation, hardness, etc., and is useful as a filler or aggregate having low grinding and abrading power of particle. It is suitable especially as a filler for resin encapsulation material of electronic parts. The particle can be produced by adding one or more compounds selected from halogen compound (e.g. AlF₃, CaF₂, etc.), boron compound (e.g. b₂O₃) and hydrated alumina to crushed electrofused alumina and/or sintered alumina having the above size, heating the mixture at 1,000W1,550° C and crushing the product.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

⑤ 日本国特許庁 (JP) ① 特許出願公開
 ② 公開特許公報 (A) 昭62-191420

⑥ (Int.Cl.) ¹	識別記号	序内整理番号	③ 公開 昭和62年(1987)8月21日
C 01 F 7/02		7508-4G	
C 04 B 35/10		Z-7412-4G	
// C 08 K 7/10	CAM	A-6845-4J	
C 09 C 3/00	KCL PBP	7102-4J	審査請求 未請求 発明の数 3 (全9頁)

④ 発明の名称 球状コランダム粒子およびその製造方法

⑤ 特 願 昭61-30923

⑥ 出 願 昭61(1986)2月17日

⑦ 発明者 小田 幸男 藤沢市長後1230-4

⑧ 発明者 小川 純 川崎市中原区北谷町95-1 昭和電工上平間寮

⑨ 出願人 昭和軽金属株式会社 東京都港区芝公園1丁目7番13号

⑩ 代理人 弁理士 菊地 精一

明細書

1. 発明の名称

球状コランダム粒子およびその製造方法

2. 特許請求の範囲

1. 単一粒子が最大径 1.50 μm 以下、平均粒子径 5 ~ 3.5 μm であり、かつカッティングエッジを有しない形状であることを特徴とする球状コランダム粒子。

2. 単一粒子が最大径 1.50 μm 以下、平均粒子径 5 ~ 3.5 μm であり、かつカッティングエッジを有しない形状であって、α線放射量が 0.01 C/m²·hr 以下であることを特徴とする球状コランダム粒子。

3. 単一粒子が最大径 1.50 μm 以下、平均粒子径 5 ~ 3.5 μm である電解アルミナ及び/又は焼結アルミナの粉砕品に、ハロゲン化合物、硼素化合物、及びアルミナ水和物のうちの 1 種又は 2 種以上を添加し、温度 1000°C ~ 1650°C において加熱処理し、次いで解砕することを特徴とする球状コランダム粒子の製造方法。

4. ハロゲン化合物が、AlF₃、NaF、CaF₂、MgF₂、Na₃AlF₆ のうちの 1 種もしくは 2 種以上であることを特徴とする特許請求の範囲第 3 項の球状コランダム粒子の製造方法。

5. 硼素化合物が B₂O₃、H₃BO₃、mNa₂O·nB₂O₅、硼酸化合物のうちの 1 種もしくは 2 種以上であることを特徴とする特許請求の範囲第 3 項の球状コランダム粒子の製造方法。

6. アルミナ水和物がバイヤー水酸化アルミニウム及び/又はアルミナゲルであることを特徴とする特許請求の範囲第 3 項の球状コランダム粒子の製造方法。

7. 電解アルミナ、焼結アルミナ、アルミナ水和物の α 線放射量が 0.01 C/m²·hr 以下であることを特徴とする特許請求の範囲第 3 項の球状コランダム粒子の製造方法。

3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明はカッティングエッジを有しない球状コランダム粒子およびその製造方法に係り、電子部

品の封止材料用充てん剤、仕上げラッピング材の原料、耐火物、ガラス、セラミックおよびそれらを含む複合材における球状骨材等に有用を低研磨性、かつフロー特性に優れた球状コランダム粒子およびその製造方法に関するもの。

(従来技術)

近年、電子部品が小型化高密度化するのにともなって放熱性の優れたゴム・プラスチック系の絕縁材料の要求が増加し、充てん剤として熱伝導の大さなアルミニウムが注目され、滑触シリカや結晶性シリカの代りに使用されはじめている。特にICなど半導体の封止材料用途では、平均粒子径が5μm以上好ましくは10μm以上で、かつ3ミクロンの微粒から44ミクロン以上の粗粒まで巾広い粒度分布の粗粒が要求される。かくコランダム(β-Alミナ)はモース硬度が大きいため、機械装置の磨耗が激しいことが知られている。そのため粒子の形状としてカッティングエッジのない丸味のある球状のものが望まれる。又、キャスター用耐火物用途では従来から使用されている不規則形状

かかる従来法の問題点を解決するため、粒度が5μm以上の規則形状の α -Al₂O₃(コランダム)粒子を作るために、2、3の新しい方法が提案されている。例えば特公昭60-33763号によれば、高ナトリウム含有の水酸化アルミニウムを予備脱水後、特定の鉱化剤を添加し、ロータリー・キルンで焼成し粗大粒のアルミニウムを得る方法が開示されている。又、特開昭58-181725号には、乾式吸収アルミニウムに沸騰および/又は、翻葉を含む鉱化剤を加え、ロータリー・キルンの焼成により、同様のアルミニウム粗粒が得られることが示されている。しかるに、これらの方で作られる粗粒アルミニウムの形状は前記特開昭58-181725号明細書の図面(顯微鏡写真)に例示される如く、規則的なカッティングエッジを有するもので丸味のある球状のものではない。

(発明が解決しようとする問題点)

コランダムはモース硬度が大きく、プラスチックやゴムその他の材料に混合充てんするさいに、あるいはアルミニウム粒子を充てんした複合材料を成

特開昭62-191420(2)

の骨材粒子と微粒子を球形ないしは球状化することにより、キャスター用材料の低水分散動性の改善、焼成吸収率の低下、耐熱クラック性の改良が図られており、その材料のひとつとして平均粒子径が5μm以上好ましくは10μm以上の球状のコランダム粒子が要求されている。

斯くてコランダム粒として電融アルミニウムや焼結アルミニウムの粉砕品が知られているがいざれも鋭いカッティングエッジをもつ不規則形状の粒子であり、それ故に研削、研磨材として有用である。又、球状アルミニウム粒子を製造する方法として、バイヤー法のアルミニウムを高周波炉や酸水素炎中に噴射し、溶融させ急冷することにより球形化するいわゆる溶射法が知られている。しかし、この方法は、熱量単位が大きく、経済的でないばかりか、得られるアルミニウムは α -Al₂O₃(コランダム)が主成分ながら、 β -Al₂O₃などを副成分として含有するのが通例である。これらの副成分の混在は、アルミニウムの熱伝導率を小さくする原因になり好ましくない。

形・加工するさいに、混練・成形加工装置を著しく損傷することが知られている。特にIC、LSI、VLSI等の電子部品の樹脂封止材料の充てん剤として、既存のアルミニウム(特に研磨材や耐火物に使われている電融アルミニウムや焼結アルミニウムの粉砕品)を利用しようとするとき、その鋭いカッティングエッジのため研削、磨耗が激しくかつ、サンディング・ワイヤーや半導体粒子を損傷することが大きな欠点となっている。かかる欠点はIC、LSI、VLSI等の樹脂封止材に限らず、広く電子部品の電気絕縁用樹脂や、構造材料用のエンジニアリングプラスチックにアルミニウムを充てんし、熱伝導率や耐摩耗性などを改良する用途目的にとて大きな障壁となっている。

(問題点を解決するための手段)

本発明者らは上記した現状にかんがみ熱伝導率や電気絶縁性、硬さなどコランダム粒子固有の特性を損うことなく、粒子の研削、研磨力の少い充てん剤用あるいは骨材用コランダムの開発を目的として種々研究した結果、本発明に到達したものである。

すなわち、本発明の要旨は、

(1) 単一粒子が最大径 1.50 μm 以下、平均粒子径 5 - 3.5 μm であり、かつカッティングエッジを有しない形状であることを特徴とする球状コランダム粒子でありさらに必要に応じて上記粒子のα線放射量が 0.01 C/cm²·hr 以下であることを特徴とする。

(2) さらに、上記コランダム粒子の製造方法としては特定粒子径の電融アルミナ及び／又は焼結アルミナの粉砕品にハロゲン化合物、酸素化合物、及びアルミナ水和物のうちの 1 種または 2 種以上を添加し、温度 1000°C ~ 1550°C において加熱処理し、次いで解碎することを特徴とする球状コランダム粒子の製造方法である。

本発明者らは、從来から研磨材や耐火物の細骨材に使用されている電融アルミナあるいは焼結アルミナの粉砕品で、平均粒子径が 5 μm ~ 3.5 μm 好ましくは 1.0 ~ 2.5 μm の範囲にある粒度のもの（例えば、昭和電工（株）製品 RW220P、SRW325P など）が、現在、電子部品の封止材料の充てん用

ミナ粗粒は、公知の方法で製造される電融アルミナあるいは焼結アルミナのいずれでも且く、電融あるいは焼結アルミナの粉砕品の粒度分布は沈降法による平均粒子径が 5 μm ないし 3.5 μm、好ましくは 1.0 μm ないし 2.5 μm の範囲のもので最大粒子径は 1.50 μm を超えず、好ましくは 7.4 μm 以下である。平均径が 5 μm 以下の場合は、水酸化アルミニウムに結晶成長剤を添加する公知の方法で丸味のある粒子形状のものが得られるため本発明を適用する必要が無い。又、原料の平均径が 3.5 μm 以上あるいは 1.50 μm より大きさを粒子が増えると、粗粒のカッティングエッジの減少が不十分になるため好ましくない。又、粗粒の球状化を促進するために予めアルミナ水和物特に水酸化アルミニウムやアルミナ・ゲルあるいは焼結アルミナに混合して加熱処理することが有効であることが見出された。経済的な観点からはバイヤー法水酸化アルミニウム（ギアサイト結晶）が好ましくその平均粒子径 1.0 μm 以下のものが最適

特開昭62-191420(3)

として用いられている電融シリカあるいは結晶性シリカ（アルファー・クオルツ）の粉砕品の粒度分布とはほぼ同じような分布を有することに注目した。これらのアルミナは、溶融または 1500°C ~ 1550°C の高温度で熱処理されているためアルミナの結晶が十分に発達しその粉砕物は充てん剤として優秀な粒度分布を有するものの前述した如く粉砕工程において鋭いカッティングエッジが生成されるため充てん剤として実用されていない。そこで本発明者らはこれらの粗粒の粒度分布を維持しつつ、粒子形状の改良について鋭意研究した結果、ハロゲン化合物、酸素化合物等、アルミナの活性化剤あるいは結晶成長剤として從来から知られている公知の薬剤を電融アルミナあるいは焼結アルミナの粉砕品に少量添加し 1000°C ~ 1550°C の温度で加熱処理する方法により、これらアルミナ粗粒の鋭い角すなわちカッティングエッジが減少し、同時に形状が球状化することを見出し本発明を完成するに至ったものである。

本発明において出発原料として用いられるアル

ミナ粗粒は、本発明者等の観測によるとかかる球状化促進剤は、後述する薬剤と相乗的に粗粒アルミナに作用し、不規則的な鋭いカッティングエッジに選択的に吸収され球状化するという驚くべき現象が認められた。さらに漸次的な効果として特に水酸化アルミニウムあるいはアルミナゲルのようなアルミナ水和物を添加することにより、熱処理物の集塊の凝集力が弱くなり、一次粒子への解碎が容易になるという特徴が認められた。かかる球状化促進剤の最適添加量は、電融アルミナあるいは焼結アルミナの粉砕品の粒度により異なるが水酸化アルミニウムを添加する場合、5 wt% 乃至 100 wt%（アルミナ換算、電融アルミナあるいは焼結アルミナに対する割合）が好ましい。5 wt% 以下では集塊の凝集力が強くなり、又、100 wt% を超えると過剰の水酸化アルミニウムが遊離した微粒のアルミナとして製品中に混入するので好ましくない。

熱処理時に添加する薬剤としては、アルミナの結晶成長促進剤として公知の单独又は併用され

特開昭62-191420(4)

水ハロゲン化合物、特に NaF 、 CaF_2 のどとき沸点化合物及び／又は MgF_2 、 Na_3AlF_6 、 B_2O_3 、 H_3BO_3 、 $\text{mNa}_2\text{O}\cdot\text{nH}_2\text{O}_3$ 、硼沸点化合物などの硼素化合物が良く、特に沸点化合物と硼素化合物の併用、もしくは硼沸点化合物が好ましい。薬剤の添加量は、加熱温度、炉内の滞留時間、加熱炉の種類により異なるが効果的な添加量は全アルミナ分に対して 0.1 ~ 4.0 質量%であることが認められた。加熱炉の種類としては単巻、トンネル窯、ロータリーキルンのような公知の手段でよく、加熱温度は水酸化アルミニウムなどアルミナ水和物を共存させる場合はそれが α -アルミナに実質的に転化する温度、すなわち約 1150°C 以上でなければならず、共存しない場合は 1000°C 以上の温度で本発明の目的は達成される。いずれの場合でも、特に好ましい加熱処理温度範囲は 1350°C 以上、1550°C 以下である。1550°C 以上の温度になると、水酸化アルミニウムの共存下でも集塊の凝集力が強くなり、一次粒子への解碎が容易に進まなくなる。加熱炉の滞留時間は加熱温度によって異なるが粒形が球状化するためには、30 分以上、好ましくは 1 時間ないし 3 時間程度の滞留時間が必要である。かかる方法により、製造された球状アルミナ粒子は、二次凝集粒の形態をとるため、公知の粉碎手段、例えばポールミル、振動ミル、ジェット・ミルなどにより、短時間の解碎を経て所望の粒度分布の球状コラゲン粒子が得られる。

又、上記の製法においてウラン、トリウム等の放射性元素の含有量の少ない電融アルミナ又は焼結アルミナと球状化促進剤である水酸化アルミニウム等を用いることにより低 α 放射量の球状コラゲン粒子を製造することができる。 α 放射量の少ない ($0.01 \text{ C/cm}^2 \cdot \text{hr}$) 球状アルミナは高集成度 IC、LSI、VLSI の樹脂封止材フィラーとして用いる場合、 α 線によるメモリー素子の誤動作（いわゆるソフト・エラー）を防止する目的のために特に有用である。上述のごとく本発明の要旨は次のとくである。

以下、本発明について実施例を多けて説明する。

(実施例 1)

市販の焼結アルミナ粉碎品（昭和電工（株）製 SW-325F、平均粒径 1.2 μm、最大粒径 4.8 μm）1000 g に対して試験級の無水沸点アルミニウムをおよび硼酸を、それぞれ 20 g づつ添加、混合し、アルミナセラミック質耐熱容器に挿入し、カンタル電気炉内にて温度 1450°C、3 時間加熱後、炉から取り出した焼成物について硬度を評価し、更にこの焼成物を振動ポールミル（川崎電工（株）製 SM-0.6、焼成物 100 g と 1.0 mm φ HD アルミナ・ポール 1000 g を投入）にて 30 分間、解碎し、この解碎物の全 Na_2O 含有量を求め、また粒度分布をレーベ回折法（シーラス）により求めると共に走査電子顕微鏡写真を撮像（倍率 2500）した。その結果を表 1、実施例 1 の欄および第 1 図(a)に示す。

(実施例 2)

市販の粉碎電融アルミナ（昭和電工（株）製 RW-92 (325F)、平均粒径 1.3 μm、最大粒径 4.8 μm）を用い、添加物および配合量および方法

は実施例 1 と同様にして焼成物およびその解碎物を得た。この焼成物の硬度および解碎物の全 Na_2O 含有量、粒度分布、 α -アルミナ粒子および形状について実施例 1 と同様の方法にて求めた結果を表 1、実施例 2 の欄および第 1 図(b)に示した。

(比較例 1)

実施例 1 と同一の焼結アルミナ粉碎品を、薬剤添加することなく单独にて実施例 1 と同一条件にて加熱処理して焼成物およびその解碎物を得た。これらの試料について実施例 1 と同様に評価した結果を表 1、比較例 1 の欄および第 2 図(a)に示した。

(比較例 2)

実施例 2 と同一の粉碎電融アルミナを、薬剤添加することなく单独にて実施例 2 と同一条件にて加熱処理して得た焼成物および解碎物の評価結果を表 1、比較例 2 の欄および第 2 図(b)に示した。

表 1

		実施例 1		実施例 2		比較例 1		比較例 2	
		SRW(325F) AlF ₃ 2% H ₃ BO ₃ 2%	SRW(325F) AlF ₃ 2% H ₃ BO ₃ 2%			SRW(325F) AlF ₃ 2% H ₃ BO ₃ 2%		SRW(325F) AlF ₃ 2% H ₃ BO ₃ 2%	
加熱条件		やや弱い 1450°C × 3時間	やや弱い 1450°C × 3時間	同左	同左	同左	同左	同左	同左
焼成物の形状	全ナトリウム分(Na ₂ O) %	0.01	0.01	0.15	0.07	6	8	43	130
	粒度分布 ^a	9	12	6	8				
	+32ミクロン(極細)	25	20	45	43				
	-10ミクロン(粗)	160	185	120	130				
	平均粒径(ミクロン)								
	α-Alミニナ粒子 ^b	5~50ミクロン	5~50ミクロン	同左	同左	1~50ミクロン	不規則形状	球状	不規則形状
分 布	大きさ	球状	球状	球状	球状				
	形狀								

*1 振動ボールミルにより30分間碎した試料についての分佈値。
 *2 レーダー回折法(シーラス)による。
 *3 走査型電子顕微鏡によると。

例1と同様の評価を行なった結果、表2、実施例3の欄に示す成績を得た。

(実施例 4)

実施例3において水酸化アルミニウムの添加量を1.7%とし、他は実施例3と同様の方法で得た試料の成績を表2、実施例4の欄に示す。

(実施例 5)

実施例3において水酸化アルミニウムの添加量を3.0%とし、他は実施例3と同様の方法で得た試料の成績を表2、実施例5の欄に示す。

(比較例 3)

実施例5において、溶剤添加せず、他は実施例5と同様の方法で得た試料の成績を表2、比較例3の欄に示す。

上記実施例3～5および比較例3の結果によれば、溶剤を添加しない比較例3の試料は微細水酸化アルミニウムから生成した微細なアルミニナ粒子と、粗大な焼結アルミニナ粒子の2成分が混り合った状態になり、後者の粒子の形状変化は認められなかった。一方、溶剤を混合した実施例3～5の

特開昭62-191420(5)

以上の結果から本説明コランダム粒子(実施例1および2)は平均粒径1.6.0 μm、最大粒径5.0 μmであり(表1)、また第1図(a)、(b)に示すごとく大きさが5.4μmないし5.0 μmの丸味のある球状のα-Alミニナ(コランダム)粒子として得られている。一方、比較例1および2の試料は加熱処理前後にかけて形状変化は認められず、鋭いカッティング・エッジを有する不規則形状の粒子であることが認められる。

以上実施例および比較例によってみれば、本発明粒子は従来品である、鋭いカッティング・エッジを有する不規則形状と全く異り、粒度の揃った、カッティングエッジのない球状コランダムであることは明らかである。

(実施例 3)

実施例1と同様の焼結アルミニナに対して平均径1.4μmの微粒水酸化アルミニウムを1.0% (アルミニナ換算で外割りの重量%)を添加、混合し実施例1と同じ種類と量の溶剤を添加し、同様の方法にて焼成、解砕した試料を得た。これについて実施

試料はいづれも水酸化アルミニウムが焼結アルミニナに吸収され、粗大な丸味のある球状のコランダム粒子であった。

(実施例 6)

焼結アルミニナ SRW 325 F を焚口の温度を約1350°C に調節したロータリーカルンの底部より連續的に供給しながら一方の焚口より圧縮空気を用いて固形化アンモニウムを0.2重量%の濃度(アルミニナに対する割合)で、炉内に噴霧した。焼結アルミニナの供給量は、1000°C以上の焼成帯での滞留時間が約3時間になるよう調節した。焚口から得られた焼成物を、振動ボール・ミルで1.5分間、解砕し、実施例1～5と同様の評価を行なった。顕微鏡で観察した粒子は大きさが約3ミクロンないし4.0ミクロンの粗大な球状粒子であった。

(実施例 7)

市販の粗粒の耐火骨材グレードの焼結アルミニナ(昭和電工(株)製 SRW 48 F)を振動ボールミルにて1時間粉碎し、150メッシュ(タイマー1回、自開き10.6ミクロン)の篩を通して、粗粒強

表 2

		実施例 3		実施例 4		実施例 5		実施例 6	
原 料	SRW 42F (wt%)	100	%	100	%	100	%	100	%
水酸化アルミニウム (%)	10	17	30	30	30	30	30	30	30
結晶成長剤	AlF ₃ 2%	H ₃ BO ₃ 2%							
加 热 条 件	1450°C × 3時間								
焼成物の大きさ	全ナトリウム分(Na ₂ O wt%)	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
粒 度 分 布	+32ミクロン(%)	17	11	6	6	1	1	1	1
分 析 値	-10ミクロン(%)	22	28	30	30	63	63	63	63
	平均粒径(ミクロン)	19.4	16.5	15.0	15.0	6.8	6.8	6.8	6.8
	α-アルミニナ粒子	5~60	4~50	3~50	3~50	不規則形状と球状	不規則形状と球状	不規則形状と球状	不規則形状と球状
	大きさ	大	中	中	中	大	中	中	大
	形 状	球状	球状	球状	球状	球状	球状	球状	球状

表 3

		実施例 7		実施例 8	
原 料		SRW 42F の粉砕品 ^a	RW-92 (200F)		
水酸化アルミニウム (5ミクロン)		30%	30%		
結晶成長剤	AlF ₃ 2%	H ₃ BO ₃ *	同上		
加 热 条 件	1450°C × 3時間				
焼成物の大きさ	非常(柔かい)	同上			
分 析 値	全ナトリウム分 (Na ₂ O wt%)	0.02	0.02		
	粒度分布				
	+32ミクロン(%)	26	35		
	-10 (%)	12	15		
	平均粒径(ミクロン)	21.7	25.6		
	α-アルミニナ粒子	5~80ミクロン	5~80ミクロン		
	大きさ	5~80ミクロン	5~80ミクロン		
	形 状	球状	球状		

* 振動ボールミル1時間粉砕後、150MeVの電子線を通過させたもの(平均径 5ミクロン)

特開昭62-191420(6)

分を除去したものに平均粒径約5μmの水酸化アルミニウムを3.0重量%混合し、媒剤として無水弗化アルミニウムと硼酸とをそれぞれ2.0重量%づつ添加したものを実施例1と同様の方法にて焼成、解碎して得た試料についての評価成績を表3、実施例7の欄に示した。

(実施例8)

市販の電融アルミナ(昭和電工(株)製 RW-92 (220F)、平均粒径28.5μm、最大粒径1.96μm)の150メッシュ筛下粒子に対して実施例7と同様の方法により得た試料についての評価成績を表3、実施例8の欄に示した。

また比較のため水酸化アルミニウムを混合しない試料についても同様の試験を行なった。(表示せず)

実施例7および8の操作で水酸化アルミニウムを、混合しなかったものは、焼成物の粒子同士が半融状態で結合し、ミルによる解碎が、困難であったが、水酸化アルミニウムを共存させたものは容易に1次粒子まで解碎することができた。

実施例7、8の試料についても、粒度分布の測定や電子顕微鏡による観察を行ない表3に示す通り、実施例7および8のいずれも粒子の大きさが5ミクロンないし80ミクロンの球状の粗大なα-アルミニナ粒子から、構成されることが確認された。(実施例9)

市販の低ε線タイプのアルミナ(α線放射量0.01e/cm²·hr以下)を、電融して得たインゴットを放射性元素のコンタミが混入しない条件で解碎・粉碎・分級して得た平均径20ミクロン、最大粒子径74ミクロンの電融アルミナ粗大粒子(α線放射量0.005e/cm²·hr)に公知の方法で得た低ε線タイプ(α線放射量0.005e/cm²·hr)の水酸化アルミニウム(平均径5ミクロン)を3.0wt%混合し、媒剤として硼酸及び無水弗化アルミニウムを各々0.5wt%添加しアルミナ・セラミック質の耐熱容器に装入し、カンタル電気炉にて1500°Cの温度で3時間、加熱した。焼成物を振動ボールミルで約30分間、粉碎したものについて粒度分布、電子顕微鏡により粒子の大きさ、形状を評

個したところ、大きさが3ミクロンないし50ミクロンの球状の粗大・アルミニナ粒子に変化していることを確認した。又、この試料の表面放射量は $0.004\text{c}/\text{cm}^2\cdot\text{Hr}$ であった。

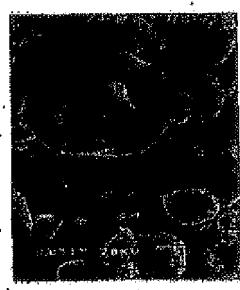
(発明の効果)

以上により明かな通り、本発明のアルミニナ粒子は、いずれも中広い粒度分布を有し、個々の粒子が球状の形をしており、半導体封止樹脂の用途で機械装置の摩耗が少なく、かつ成形時の流れのよいフィラーとして有用である。さらに被削削面に切削傷を生じない仕上げラッピング材の原料として、又、キャスター・耐火物やガラス、セラミックなどの用途における粗大骨材成分としてホール特性、強度、耐熱クラック性を改良することが期待される。

4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明球状コランダム粒子の電子顕微鏡写真、第2図は従来品コランダム粒子の走査電子顕微鏡写真(倍率2500)を示す。

第1図(a) 実施例1のコランダム粒子、



(a)



(b)

第1図



(a)



(b)

第2図

特開昭62-191420(7)

- 同(b) 実施例2のコランダム粒子、
- 第2図(a) 比較例1のコランダム粒子、
- 同(b) 比較例2のコランダム粒子。

特許出願人 昭和電金属株式会社
代理人 弁理士 清地 精一

手続補正書(自発)

昭和61年5月21日

特許庁長官 宇賀道郎謹

1. 事件の表示

昭和61年特許願第30923号

2. 発明の名称

球状コランダム粒子およびその製造方法

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住所 東京都港区芝公園一丁目7番13号

名称 昭和電金属株式会社

代表者 林 健彦

4. 代理人

人(郵便番号105)

住所 東京都港区芝大門一丁目13番9号

昭和電工株式会社内

電話 東京 432-5111番(大代表)

氏名 (7037) 弁理士 清地 精一



5. 補正の対象

明細書の「特許請求の範囲の欄」及び「発明の詳細な説明の欄」

6. 補正の内容

- (1) 明細書の「特許請求の範囲の欄」を別紙の通り訂正する。
- (2) 明細書の「発明の詳細な説明の欄」を下記のとおり訂正する。
 - 1) 明細書の第4頁7行目の「コランダム粒」とあるのを「コランダム粒子」に訂正する。
 - 2) 明細書の第5頁下から3行目の「コランダム」とあるのを「アルミウム」に訂正する。
 - 3) 明細書の第8頁1行目の「電極」とあるのを「導体」に訂正する。
 - 4) 明細書の第8頁2行目の「(アルファ・タオルク)」とあるのを「(α-SiO₂)」に訂正する。
 - 5) 明細書の第16頁下から9行目の「粒度」とあるのを「粒形」に訂正する。
 - 6) 明細書の第16頁下から8行目の「コラン

(別紙)

表 3

	実施例7	実施例8
原 料	SRW-48F の粉砕品 ^{†1} 80% AZF ₃ 2% H ₃ BO ₃ 2%	SRW-92 (200F) 30% 同 左
加 热 条 件	1450°C 3時間	
成 物 の 硬 度	非常に柔かい	同 左
分 析	全ナトリウム分 (Na ₂ O相当) 粒度分布 +32μm (%) -10% (%) 平均粒径 (μm) α-アルミニウム粒子 大きさ 形 状	0.02 2.6 1.2 21.7 5~80μm 球 状

*1 振動ボールミル1時間粉砕後、15.0MgF₂の粉を通過させたもの(平均径11μm)

特開昭62-191420(8)

ダム」とあるのを「コランダム粒子」に訂正する。

7) 明細書の下記の箇所に記載の「ミクロン」を全て「μm」に訂正する。

第18頁下から7行目、下から5行目、及び最下行

第22頁4行目、10行目、11行目、及び下から7行目

第23頁1行目、2行目

8) 明細書の第21頁表3を別紙の通りに訂正する。

9) 明細書の第22頁8行目、12行目、13行目及び第23頁4行目に記載の「Mr」を「hr」に訂正する。

(別紙)

特許請求の範囲

1. 単一粒子が最大径150μm以下、平均粒子径5~35μmであり、かつカッティングエッジを有しない形状であることを特徴とする球状コランダム粒子。

2. 単一粒子が最大径150μm以下、平均粒子径5~35μmであり、かつカッティングエッジを有しない形状であって、β線放射量が0.01eV/g·hr以下であることを特徴とする球状コランダム粒子。

3. 単一粒子が最大径150μm以下、平均粒子径5~35μmである電解アルミニウム及び/又は焼結アルミニウムの粉砕品に、ハロゲン化合物、硼素化合物、及びアルミニウム水和物のうちの1種又は2種以上を添加し、温度1000°C~1550°Cにおいて加熱処理し、次いで解碎することを特徴とする球状コランダム粒子の製造方法。

4. ハロゲン化合物が、AlF₃、NaF、CaF₂、MgF₂、Na₃AlF₆、のうちの1種もしくは2種以上

特開昭62-191420(○)

手 続 楠 正 審 (自発)

昭和61年2月27日

特許庁長官 黒田 明雄 様

1. 審件の表示

昭和61年特許願第 30923号

2. 発明の名称

球状コランダム粒子およびその製造方法

3. 補正をする者

本件との関係 特許出願人

住所 東京都港区芝公園一丁目 7番13号

名称 昭和電工株式会社

代理人 林 錦 宗



4. 代理人 (登録番号 105)

居所 東京都港区芝大門二丁目10番12号

同上

電話 東京 632-5111番 (大代表)

氏名 (7037)弁理士 楠 地 雄 一



5. 補正の対象

明細書の「発明の詳細な説明の欄」

6. 補正の内容

1) 第11頁、第1行～第3行の「ハロゲン化合物、特に NaF 、 CaF_2 のことと並置化合物及び／又は NaF_2 、 Na_3AlF_6 、 B_2O_3 、」
とあるのを、

「ハロゲン化合物、特に NaF 、 CaF_2 、
 AlF_3 、 NaF_2 、 Na_3AlF_6 のことと並置化合物
及び／又は B_2O_3 、」
と訂正する。